

## OBTENCION DE CRISTALES DE KDP PARA LA GENERACION DE SEGUNDOS ARMONICOS OPTICOS

Rolando Rodríguez, Federico L. Falcón, Carlos Arencibia, Humberto Mesa, Elsa Hernández, Instituto de Materiales y Reactivos para la Electrónica (IMRE). Universidad de La Habana.

### RESUMEN

Se reporta la obtención de monocristales de KDP ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ) crecidos a partir de soluciones por el método de evaporación del solvente a temperatura constante. Estos fueron montados en una celda especialmente diseñada y construida para la generación de segundos armónicos.

### ABSTRACT

The growing of single crystals of KDP ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ) from solutions by solvent evaporation at constant temperature method is reported. They were fixed in a specially designed cell for the second harmonics generation.

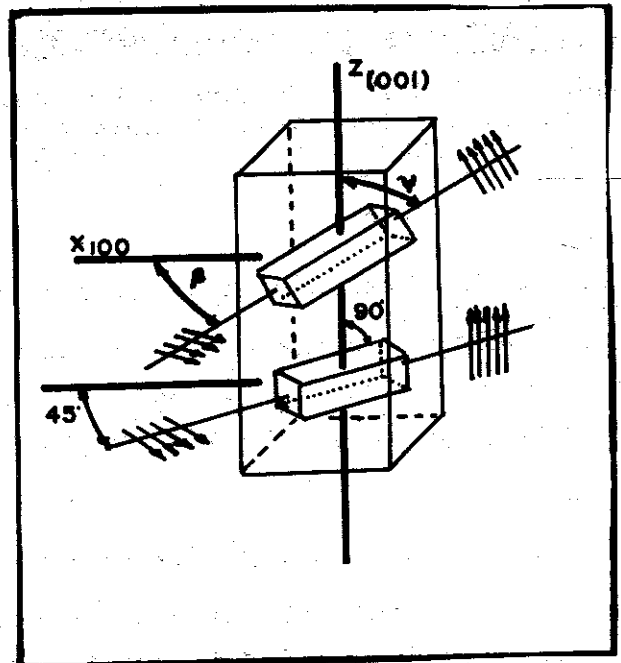
### INTRODUCCIÓN

La óptica no lineal es un método poderoso para ampliar las frecuencias fijas que, en un número limitado, se obtienen de los diferentes tipos de láseres. A partir del primer experimento de Franken en 1961 este campo ha progresado rápidamente, a tal punto que en la actualidad puede ser obtenida radiación coherente sintonizable en toda la zona espectral desde los 190 nm hasta los 7 000 nm con altas potencias, ancho de bandas estrechos y buena eficiencia de conversión.

Existen una serie de cristales que son actualmente utilizados con este fin, entre ellos tienen un papel de primera importancia aquellos pertenecientes al sistema tetragonal, con simetría  $\bar{4} 2m$ , que poseen carácter uniaxial, birrefringencia negativa y con propiedades únicas en la generación de segundos armónicos (GSA) de la radiación coherente. Un principal representante de esta familia es el cristal de KDP ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ), crecido a partir de soluciones.

Estos cristales pueden ser orientados cristalográficamente con respecto al haz de la radiación de dos formas diferentes, definiéndose los tipos I y II de sintonía por ángulo. Para la sintonía angular tipo I el rango de operación del cristal es entre los 517 nm y los 1700 nm y para la sintonía angular del tipo II entre los 732 y 1700 nm. También es posible efectuar una sintonía del cristal por temperatura, estando su temperatura de máxima seguridad de operación alrededor de los  $120^\circ\text{C}$ . La temperatura de mínima seguridad de operación depende de la temperatura de transición del cristal, por debajo de la cual el cristal cesa su óptica no lineal y que es de  $-153^\circ\text{C}$ . Para este tipo de sintonía el rango de trabajo va desde los 514 nm a  $-11^\circ\text{C}$  hasta los 522 nm a  $+100^\circ\text{C}$  [1-2].

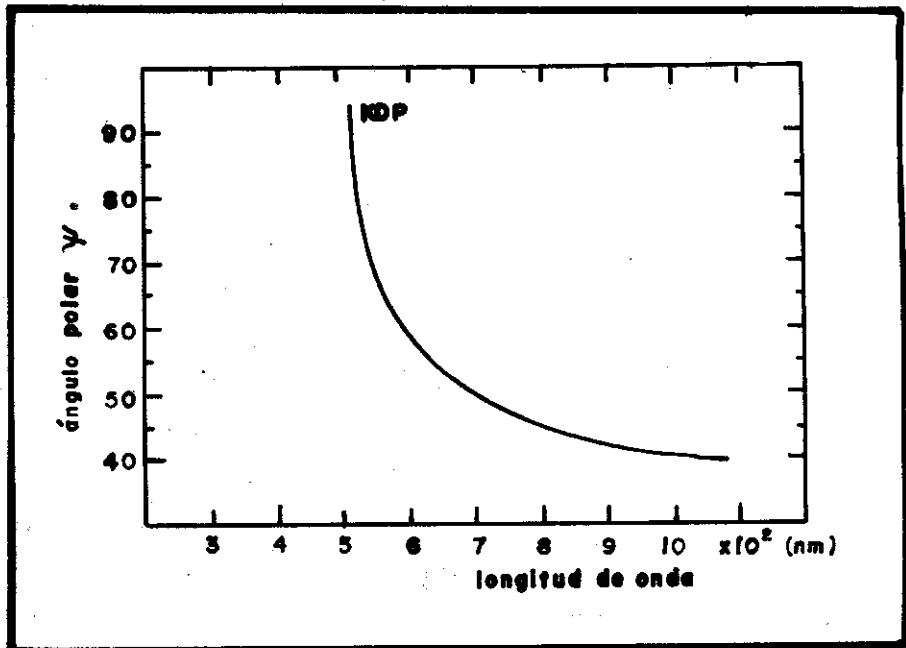
Figura 1. Orientaciones cristalográficas para sintonía angular del tipo I y por temperatura.



Las orientaciones cristalográficas para la sintonía angular de tipo I y la sintonía por temperatura de estos cristales se muestran en la Figura 1. Para una determinada longitud del cristal la eficiencia de conversión de la GSA depende fuertemente del ángulo  $\psi_m$ . Como se observa en la Figura 2, este ángulo es evaluado en dependencia de la longitud de onda. La región efectiva para obtener la GSA mediante la orientación de la muestra cristalina respecto al eje óptico se encuentra entre los 200 y los 800 nm.

Figura 2.

Comportamiento del ángulo  $\psi$  con respecto a la longitud de onda.



La sintonía angular tipo II requiere un ángulo de orientación diferente al del tipo I. Este proceso es muy eficiente particularmente para doblar la frecuencia de 1064 nm, al ser usados en procesos de fusión. La orientación para el proceso de tipo II se muestra en la Figura 3. En la Tabla I se muestran los ángulos utilizados en el KDP para la sintonía angular de los tipos I y II para diferentes frecuencias.

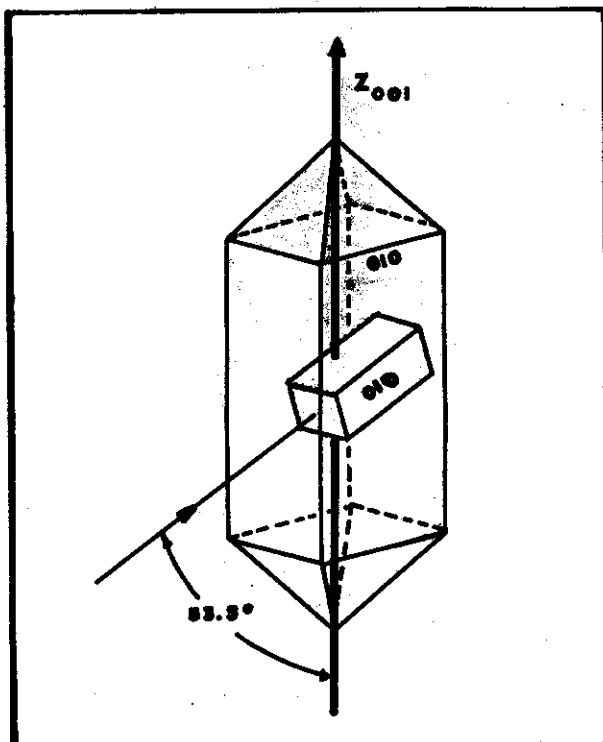


Figura 3. Sintonía angular del tipo II.

(nm) Longitud de onda	KDP	
	Tipo I grados	Tipo II grados
517.4	90	No Obtenible ↓
524.5	81.5	
600.0	60	
694.3	50.4	
707.0	49.6	
732.0	47.5	90
800.0	46.0	72
890.0	44	63.6
1058.0	40.3	59.1
1065.0	40.3	59.1
1700.0	No transparente	
6000.0		

Tabla I. Angulos para las sintonías angulares del tipo I y II.

Los principales parámetros electro-ópticos y como generador de segundos armónicos de este cristal se resumen en las Tablas II y III respectivamente.

Indice de Refraccion	Susceptibilidad no lineal $d \times 10^{12}$ m/V	Umbral de daño nominal GW/m <sup>2</sup>	Absorción lineal %·cm	Aceptación de temperatura °C·cm	Aceptación angular mr·cm	Longitud usada $L_m$	Eficiencia GSA %
				3.5	1.0	2.5	20
347							
530		17.0					
694	0.47	0.4	2.4				
1060	0.47	25.0	3.0				

Tabla II. Propiedades electro-ópticas para el KDP.

$d/dT(n_o - n_e)$ por °C	$0.7 \times 10^{-5}$
$\Delta T$ (°C)	$\pm 3.2$
Coefficiente no lineal relativo al D-KDP	1.04
Fase - Acople: Angulo	90°
Temperatura (°C)	-10

Tabla III. Coeficiente no lineal y birrefringencia térmica del KDP como GSA.

El crecimiento de monocristales de KDP desde soluciones ha sido realizado por diferentes métodos como son los de convección forzada [3], convección de concentraciones [4], disminución de temperatura [5] y evaporación de solvente a temperatura constante (ESTC), con resultados más o menos similares; sin embargo, este último resulta el más favorable para el control de los parámetros de crecimiento. Por ello, este método fue seleccionado para el crecimiento de nuestros cristales.

#### CRECIMIENTO DE MONOCRISTALES

En el crecimiento por el método de ESTC existen diversas variaciones en el diseño del cristalizador básico, incluyendo la utilización de enfriadores termoeléctricos para el control de la evaporación [6].

Dadas nuestras posibilidades tecnológicas se diseñó y construyó un cristalizador termostatado simple. La Figura 4 muestra un esquema de la instalación construida. La fuente térmica resistiva (1) se situó externamente para evitar problemas de corrosión y asimetrías térmicas; además, tal disposición tiende a evitar nucleaciones inconvenientes que con frecuencia ocurren el fondo del cristalizador. Como sensor de temperatura fue utilizado un termómetro (2) de contacto TGL 4850 con apreciación de 0.2 °C, acoplado a un sistema de control eléctrico.

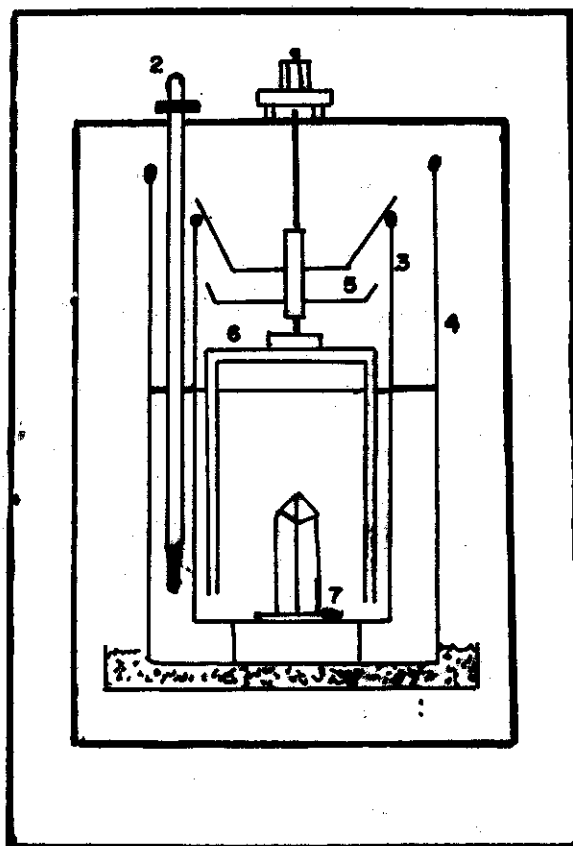


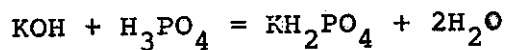
Figura 4. Esquema del cristalizador termostatado.

El recipiente cristalizador (3) utilizado posee 1 L de capacidad y 180 mm de altura; el recipiente termostatador (4) guarda la relación 1:5.

El control de la evaporación es efectuado a través de un sifón, que descansa sobre una platina (5) situada sobre la parte superior del cris-

talizador. La agitación se efectuó mediante dos paletas plásticas simétricas (6) con respecto al eje central. La velocidad de rotación era regulable y automáticamente invertía el sentido de rotación cada 3 minutos. La velocidad de agitación utilizada fue de 18 rpm. La semilla (7) fue situada en el fondo y centro del cristalizador, adherida a una lámina de teflón.

La sal de KDP fue sintetizada según la ecuación:



mezclando 168 g de KOH en 500 mL de agua con 164 mL de  $\text{H}_3\text{PO}_4$  en 500 mL de agua. Los reactivos utilizados fueron de la firma AnalaR y el compuesto fue controlado con análisis espectroscópico de radiación ultravioleta.

En todos los casos la solución fue preparada calentando agua desionizada de 0.5  $\mu\text{S}/\text{cm}$  a 70 °C y disolviendo 350 g de la sal en condiciones de agitación. La disolución fue filtrada inmediatamente e introducida en el termostato y dejada reposar durante 24 h a la temperatura de crecimiento. Posteriormente fue eliminada la deposición cristalina que se produce en el fondo y a continuación introducida la semilla en el cristalizador.

La semilla fue cortada perpendicularmente al eje z, lavada con agua desionizada y calentada a la temperatura de crecimiento antes de colocarla en el cristalizador. El eje cristalino z coincide en orientación con la vertical de la instalación. Sólo se da la opción de crecer a una sola cara en la dirección z.

Se ajustó la temperatura de crecimiento en 40°C y dicho proceso se mantuvo durante 10 días. Con temperaturas superiores se produjo la tendencia a cristales velados como resultado de la aparición de inclusiones provocadas por la alta velocidad de crecimiento. Ajustando este último parámetro se obtuvieron cristales de dimensiones adecuadas y buena transparencia, sin apreciarse en ellos defectos macroscópicos característicos en este método de crecimiento, como son la curvatura de las superficies, aparición de cristales gemelos y huecos superficiales. En algunos casos aparecieron pequeñas veladuras causadas por frecuentes interrupciones en el fluido eléctrico. La Figura 5 muestra una foto de los cristales obtenidos.

#### CONSTRUCCIÓN DE CELDAS PARA LA GENERACIÓN DE SEGUNDOS ARMÓNICOS

Con posterioridad a la obtención de monocristales de KDP de buenas características ópticas se procedió a su utilización en la construcción de celdas para la generación de segundos armónicos mediante sintonía angular del tipo I. Para ello dichos cristales fueron orientados, cortados, pulidos y posteriormente expuestos a la radiación laser de 1064 nm, se obtuvo una GSA con un 8 % de eficiencia. Se considera que este



Figura 5.  
Uno de los cristales crecidos.

valor de eficiencia puede ser sensiblemente aumentado al mejorar las condiciones de elaboración anteriormente descritas.

Las muestras ahí obtenidas fueron encapsuladas, con el fin de evitar su deterioro, en el sistema mostrado en la Figura 6.

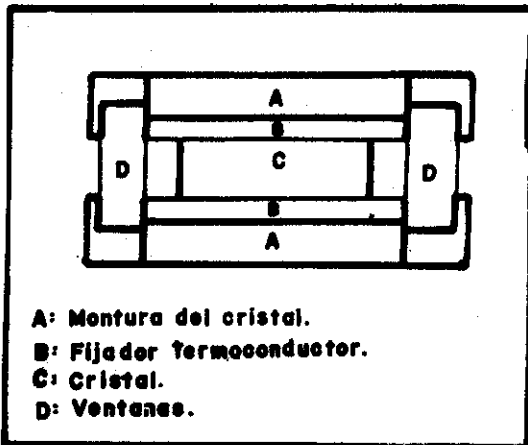


Figura 6. Esquema de la celda de protección del cristal para su uso.

Para la elaboración de estas celdas GSA deben tomarse en consideración algunas cuestiones básicas, como es el hecho que la máxima interacción del haz luminoso con el medio no lineal ocurre cuando el mismo se propaga en el plano 110. Cuando dicho haz incide con un ángulo de  $90^\circ$  con el eje óptico se alcanza una eficiencia óptima del proceso. Esta es la orientación utilizada para la sintonía por temperatura. Para la sintonía angular el haz posee un ángulo dependiente de la frecuencia del laser. En general

es preferible utilizar la sintonía por temperatura (ST) que la sintonía angular (SA) dado que esta última brinda menor eficiencia por diferentes causas. Sin embargo, el rango de sintonía que permite la ST se limita al orden de 10 nm para una variación de 100 °C. Los cristales de GSA sintonizados angularmente se orientan con una desviación de hasta 10 minutos con respecto al ángulo polar exacto para una frecuencia dada. La celda en cuestión debe ser colocada en un sistema óptico que permita una sintonía fina de 10 segundos para un uso adecuado.

En la SA el alineamiento del ángulo  $\Psi$  es un paso crítico. Frecuentemente se dibuja una línea en una de las caras del cristal para marcar la posición del eje óptico. El cristal debe ser sintonizado alrededor de un eje perpendicular a esta cara. La rotación del cristal alrededor de un eje perpendicular a la cara pulimentada o a la 3ra cara, no resulta tan crítico como la sintonía fina de  $\Psi$ . La necesidad del montaje de estos cristales como muestra la Figura 6 se debe a su carácter higroscópico y su deterioro por choques térmicos.

Por ello, estas monturas comprenden un fijador termoconductor y un sellado hermético del cristal, que se logra con un fluido inerte o con nitrógeno seco.

Durante el uso en laboratorios, donde las variaciones de temperatura pueden ser mayores de 0.5 °C, se precisa la sintonía frecuente de estas celdas. Esto puede evitarse mediante la combinación de SA y ST. En este caso, el cristal se opera a una temperatura de 40 °C para eliminar los efectos de los cambios de temperatura sobre el cristal.

## CONCLUSIONES

Se diseñó y construyó satisfactoriamente un sistema cristalizador termos-tatado apto para el crecimiento de KDP por el método de ESTC. Se realizaron crecimientos en busca de condiciones óptimas hasta obtener cristales de dimensiones adecuadas con calidad satisfactoria.

Con los cristales obtenidos se construyeron celdas para la generación de segundos armónicos (GSA). Además del diseño de estas celdas, se explican algunos aspectos de índole práctico para el uso de las mismas.

## REFERENCIAS

- [1] Franken, P.A. (1961). Phys. Rev. Lett. 7, 118.
- [2] Miller, R.C. (1965). Appl. Phys. Lett. 6, 77.
- [3] Parvov, V.F. (1967). Sov. Phys. Cryst. 12, 374.
- [4] Beyustin, A.V. (1965). Sov. Phys. Cryst. 10, 743.
- [5] Belouet, C. (1973). Act. Elect. 16, 339.
- [6] Vannay, L. (1987). Act. Phys. Hung. 61, 2, 197.